

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A) 平3-227358

⑬ Int.Cl.<sup>5</sup> 識別記号 庁内整理番号 ⑭ 公開 平成3年(1991)10月8日  
 C 08 L 67/02 LPF 8933-4 J  
 C 08 K 3/22 KJR 7167-4 J  
 7/14 KKF 7167-4 J  
 //(C 08 L 67/02  
 71:00)

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全4頁)

⑮ 発明の名称 難燃性ポリエステル樹脂組成物

⑯ 特 願 平2-20752

⑰ 出 願 平2(1990)1月30日

⑱ 発 明 者 山 真 弘 山口県防府市鐘紡町4-1 清明寮  
 ⑲ 発 明 者 春 田 和 夫 山口県山口市錦町9-7  
 ⑳ 発 明 者 西 村 透 山口県防府市牟礼上木部684-9  
 ㉑ 発 明 者 岸 山 靖 雄 山口県防府市鐘紡町5-2-9  
 ㉒ 出 願 人 鐘 紡 株 式 会 社 東京都墨田区墨田5丁目17番4号

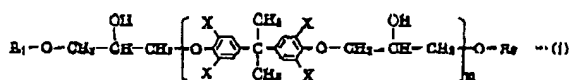
明 細 書

1. 発明の名称

難燃性ポリエステル樹脂組成物

2. 特許請求の範囲

ポリエチレンテレフタレート樹脂 30～90  
 重量%、ガラス繊維 5～80 重量%、難燃剤 5  
 ～20 重量%、及び三酸化アンチモン 1～20  
 重量%からなる組成物であって、該難燃剤が下  
 記一般式(I)で示される化合物であることを特徴  
 とする難燃性ポリエステル樹脂組成物。



(但し、式中  $R_1$ ,  $R_2$  は  $\text{C}_6\text{H}_4$  又は  $\text{R}_3\text{O}-\text{N}=\text{N}-\text{O}-\text{R}_3$   
 $\text{X}$  は塩素原子又は臭素原子であり、  
 $R_3$  は水素原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化  
 水素基であり、 $m$  の平均値は 1～20、 $n$  の  
 平均値は 0～5 で、ハロゲン含有率は 10 重  
 量%以上である。)

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は難燃性、機械的性質、熱的性質、及び  
 熱安定性に優れたポリエチレンテレフタレート  
 を主体とするポリエステル樹脂組成物に関するもの  
 である。

(従来の技術)

ポリエチレンテレフタレートは、機械的性質、  
 電気的性質、熱的性質、耐薬品性等に優れ、フィ  
 ルムやその他の成形物の材料として有用である。  
 しかし、ポリエステル樹脂は本来可燃性であるた  
 め、その用途にも制限があり、特に電気・電子部  
 品に使用する時には難燃性は必要不可欠となる。

従来、ポリエステル樹脂を難燃化する方法とし  
 て、ポリエステルにハロゲン化ビスフェノール A  
 型エポキシ樹脂を配合する方法が知られている  
 (特開昭 64-103488 号公報)。しかし、  
 上記方法で得られた樹脂組成物は熱安定性が悪く、  
 焼成押出時にゲル化する傾向があり、そのためス  
 トランド切れが多発し、生産が非常に困難である。

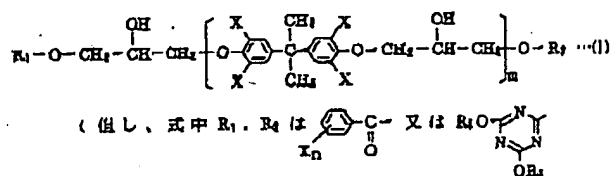
又、射出成形を確けると、熔融流動性が悪化し、長時間の連続成形が困難である。

(発明が解決しようとする課題)

本発明はこのような事情に鑑みなされたものであって、その目的とするところは、難燃性、機械的性質、熱的性質に優れ、しかも熱安定性に優れたポリエステル樹脂組成物を提供することにある。

(課題を解決するための手段)

上記の目的は、ポリエチレンテレフタレート樹脂 36～90 重量%、ガラス繊維 5～50 重量%、難燃剤 3～20 重量%、及び三酸化アンチモン 1～20 重量% からなる組成物であって、該難燃剤が下記一般式 (I) で示される化合物であることを特徴とする難燃性ポリエステル樹脂組成物によって達成される。



下し、逆に 90 重量%を超えると、機械的強度、難燃性のいずれかが不十分である。

本発明に用いられるガラス繊維は、チップドストランドタイプ、ロービングタイプ等が挙げられる。これらのうち、生産性からチップドストランドタイプが好ましく、更に繊維長は 0.4～5 mm のものが好ましい。又、ガラス繊維は通常のカップリング剤や収束剤で処理されている市販品をそのまま使用すればよい。ガラス繊維の配合量は、5～80 重量%であることが必要である。5 重量%未満では補強効果が小さく、逆に 80 重量%を超えると流動性が悪く、押出加工性、成形性が低下する。

次に、本発明で用いられる難燃剤は、上記一般式 (I) で示されるものであり、 $m$  の平均値は 1～20 であり、特に  $m$  が 12～20 のものは高温雰囲気下でもブリードアウトせず、難燃性も良好である。 $m$  が 20 より大なるものは樹脂組成物中の分散性が悪いので、物性や難燃性が低下する。又、難燃剤のハロゲン含有率は 10 重量%以上とすること

であり、 $X$  は炭素原子又は酸素原子であり、 $R_1$  は水素原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基であり、 $m$  の平均値は 1～20、 $n$  の平均値は 0～8 で、ハロゲン含有率は 10 重量%以上である。)

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明に用いられるポリエチレンテレフタレート樹脂としては、エチレンテレフタレート単位を主構成単位とする線状ポリエステル、又は他の多価アルコール、芳香族ジカルボン酸、脂肪族ジカルボン酸を少量共重合させた線状コポリエステル、更にはこれらポリエステル又はコポリエステルを主成分とする他の熱可塑性樹脂との混合物が挙げられる。なお、上記線状ポリエステル又は線状コポリエステルの固有粘度 ( $\eta$ ) はテトラクロロエタン/フェノール等重量混合溶媒中 25℃での値が 0.4～1.5 の範囲のものを使用することが望ましい。また、ポリエチレンテレフタレート樹脂の配合量は、36～90 重量%であることが必要である。36 重量%未満では押出加工性、成形性が低

が好適である。10 重量%未満では難燃剤の配合量が少なくなると難燃性が不十分となる。難燃剤の配合量は、3～20 重量%であることが必要である。3 重量%未満では難燃性が不十分であり、逆に 20 重量%を超えると、機械的強度が低下する。

次に難燃剤と併用する三酸化アンチモンの配合量は、1～20 重量%であることが必要である。1 重量%未満では難燃剤としての効果が小さく、逆に 20 重量%を超えると機械的強度が低下する。

本発明のポリエステル樹脂組成物の製造には、通常の単軸或は二軸押出機を用いればよく、混練方法は通常の方法でよい。

本発明のポリエステル樹脂組成物には、目的に応じて、公知の結晶化促進剤、充填剤、補強剤、滑剤、可塑剤、熱安定剤、光安定剤、酸化防止剤、帯電防止剤、着色剤などの添加剤を含有させても良い。

(発明の効果)

以上のように、本発明の難燃性ポリエステル樹脂組成物は、上記一般式 (I) で示される難燃剤を使

用することにより、難燃性、機械的性質、熱的性質に優れ、かつ熱安定性の良好な樹脂組成物である。すなわち、樹脂流動性が良好で樹脂押出や連続成形をスムーズに行うことができる。

以下、実施例によって本発明の内容を具体的に説明する。なお、例中の「部」及び「%」は各々重量部及び重量%を示す。

又、ポリエステル樹脂組成物の評価は下記の方法により行った。

〔難燃性〕

UL-94の火炎試験に準じて測定。

〔機械的性質〕

引張り強度はASTM D-789に準じて測定。

〔熱的性質〕

熱変形温度はASTM D-648 (荷重264 psi) に準じて測定。

〔熱安定性〕

島津フローテスターを用いて、荷重10 kg、ノズル(径1 mm、長さ10 mm)の条件で、樹脂

SG75-HIPBOMを用い、シリンダー温度270℃、金型80℃で評価用試験片を成形し、各々の評価を行った。その結果を表-1に示す。

(以下略)

30分後、1時間後、及び2時間後の流動量を測定。

〔押出加工性〕

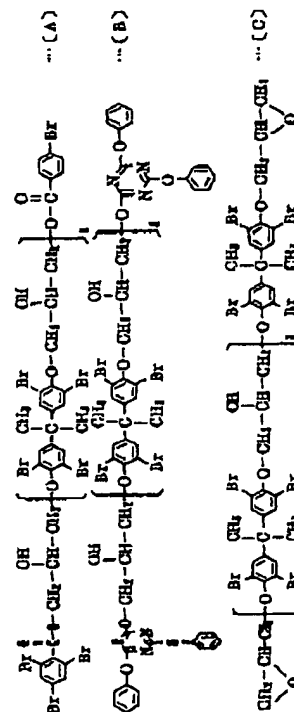
混練時間2時間の素切れ回数で評価。

〔実施例1、2、比較例1〕

テトラクロロエタンとフェノール等重量混合溶液中25℃で測定した極限粘度[η]が0.65のポリエチレンテレフタレート66部、長さ3 mmのガラス繊維(富士ファイバークラス、FEB-1205)30部、難燃剤として下記式(A)(B)の化合物と比較例として下記式(C)で示した臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂を各々8部、三酸化アンチモン4部、結晶化促進剤としてタルク2部とポリエチレングリコール(PEG#800)1%/PETとステアリン酸ナトリウム0.2%/PET、及びりん系の熱安定剤(ボルグワナー、ウルトラノックス626)0.1%/PETを二軸押出機(日本製鋼所、TEX-30)で270℃で混練し、ペレット化した。次に得られたペレットから、射出成形機(住友重機工業、マスター

表 - 1

	初期粘度 (Pa/cm <sup>2</sup> )	熱変形温度 (℃)	流動量(10 <sup>-1</sup> ml/g)			難燃性
			80分後	1時間後	2時間後	
実施例1	13.0	8.8	4.3	4.1	1.7	0-A
実施例2	13.0	8.8	4.2	4.0	1.7	0-A
比較例1	13.0	8.8	2.0	0	0	0-A



BEST AVAILABLE COPY

表-1の結果より、比較例のように臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂(C)を用いた場合には、押出し時に素切れが多数あり、生産は非常に困難であった。それに比べ、実施例のように化合物(A)(B)を用いた場合には、素切れはなく、非常に押出加工性は良好であった。また、各々の熱安定性をフローテストで評価したところ、実施例のポリエステル樹脂組成物は非常に熱安定性が良いのに比べ、比較例のポリエステル樹脂組成物は滞留1時間後にはゲル化し、流動性がほとんどなかった。

(実施例3~5、比較例2)

実施例1の離燃剤を下記式(D)(E)(F)(G)で示される化合物に代え、他の条件は実施例1と同様にしてポリエステル樹脂組成物を得た。得られたポリエステル樹脂組成物について物性、離燃性、熱処理品の離燃性、及び離燃剤のブリードアウトについて評価した。なお、熱処理品は、140℃雰囲気下で1週間処理した後、その離燃性、離燃剤のブリードアウト(滲み出し)の評価を行った。

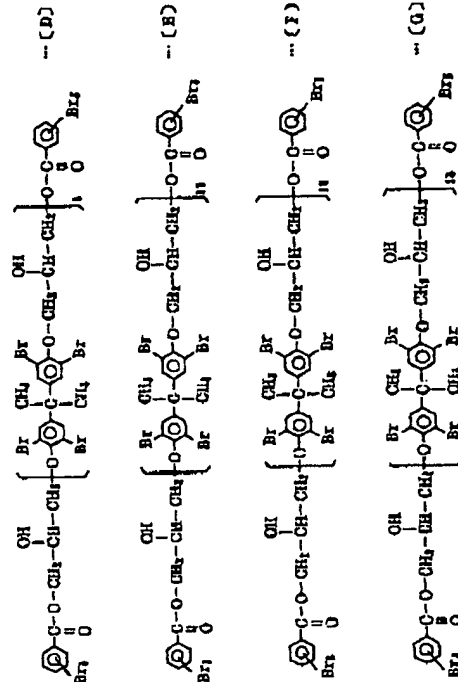


表 - 2

	離燃剤	引張強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	離燃性	熱 処 理 品	
				離燃性	ブリードアウト
実施例3	(D)	1,200	V-0	V-2	若干あり
実施例4	(E)	1,250	V-0	V-0	なし
実施例5	(F)	1,250	V-0	V-0	なし
比較例2	(G)	980	V-2	V-2	なし

表-2の結果より、実施例のようにnが1~20の化合物を離燃剤として用いた場合には、物性、離燃性が良好であり、逆に、比較例のようにnが20より大なる化合物を離燃剤として用いた場合には、離燃剤の分散が不十分で、物性、離燃性は不良であった。特に、実施例4、5の場合、高圧雰囲気下でもブリードアウトせず、離燃性も良好であった。

出 願 人 織 紡 株 式 会 社

BEST AVAILABLE COPY